



TITLE:

光学物性と励起子科学(第43回物性  
若手夏の学校(1998年度),講義ノ  
ート)

AUTHOR(S):

長澤, 信方

---

CITATION:

長澤, 信方. 光学物性と励起子科学(第43回物性若手夏の学校(1998年度),講義ノート). 物性研究 1998, 71(3): 227-250

ISSUE DATE:

1998-12-20

URL:

<http://hdl.handle.net/2433/96505>

RIGHT:

## 「光学物性と励起子科学」

東京大学理学系大学院・物理学専攻

長澤 信方

### § 1. はじめに

光学物性は物質の光学現象を扱う物性物理学の大きな分野である。原子や分子の示す光学現象もすべて広義の光学物性に含めることもできるが、固体の光学現象を主に扱う分野を指すのが一般的である。しかしながら、最近の科学や技術の進歩は、この慣習的な枠組みが必ずしも必要ではなく、かえって弊害もあるという新しい時代を迎えたという感が強い。

にもかかわらず、ここで具体的に取り上げる光学現象は全て結晶のしかも、とりわけ単純な構造をもつ半導体を舞台としている。これは単に筆者がこれまで扱ってきた研究の対象がたまたまそうになってしまったという理由にすぎないが、何事につけ複雑そうなことは考えるだけでも面倒で、ややこしい式を見るとそれだけで頭が痛くなり、できればご勘弁をという怠惰によるのがその最大の理由と言うべきだろう。しかし、不思議なもので、そのように手を抜き続けたにもかかわらず、自然をみる視野を知らず知らずに広める機会もかえって得られたという感じもする。本講義ではそのような経験を踏まえて、光学物性、特に励起子の分光学的研究の一端を紹介したい。

講義では、まず均質な媒質での光の分散論の初歩的な考えを振り返り、ポラリトンの概念を眺めよう。次に半導体や絶縁体における励起子、特に水素様の内部構造をもつワニヤ励起子や、二個の励起子が束縛した励起子分子に関するいくつかの話題を実験事実に基づいて紹介したい。最後にこの励起子や励起子分子が近似的にボース粒子であることから予想される、ボース・アインシュタイン凝縮(BEC)がこのような準粒子系で起るものかという問題を、アルカリ原子気体の BEC が実現した今日もう一度考えてみよう。光と物質との相互作用のかかわる現象を扱う限り、程度の差こそあれ色々な場面でポラリトンの概念が顔を出すことが多い。この点について、常に注意しながら話を進めることになるろう。

## § 2. 光と物質

「光とは何か」という哲学的テーマが、科学の進歩に果たした役割は今さら説明の必要はないだろう。このテーマを解く長い歴史の中で分光学は育まれたが、これが光学物性を支える基本的拠り所である。ある波長（周波数）の光と多彩な物性を持つ物質とのかかわりの微視的な理解を深めることによって、自然に内在する未知の可能性を深く探ることが光学物性の研究の最大の関心事である。

経験的に見いだされた電磁現象の諸法則は、電流に変位電流を加えるという拡張によって結局 Maxwell 方程式として統一され、真空中を伝播する電磁波としての光の姿が定量的に扱えるようになった。それは有限速度で伝播する波動としての光に関するホイヘンスの原理[1]の精神をより矛盾なく再現する道を開いた。すなわち、ある観測点  $P$  に於ける、単色光は Kirchhoff の積分表示

$$\Psi(P) = -\frac{1}{4\pi} \int_{\sigma} \left\{ \Psi \frac{\partial}{\partial n} \left( \frac{e^{ikR}}{R} \right) - \frac{e^{ikR}}{R} \frac{\partial \Psi}{\partial n} \right\} dS$$

と呼ばれる方程式の解として得られる。これは  $P$  点での場が、それを取り囲む閉局面  $\sigma$  上での場の重ね合せとして表現できることを示している。これは1次波によって波面が無数の2次波が放出され、それが互いに干渉することによって観測点  $P$  での場が形成されるというホイヘンスの原理の考えを数学的に表現したものである。因に、これを方程式と考えず、適当な境界条件を与えて右辺の積分を閉局面の特定の限られた部分だけで実行すると、左辺は回折を受けた  $P$  点での光の場の振幅が近似的に得られる。

プリズムでなぜ光の波面が向きを変えるかという問題では、透明で均質な物質の内部で光の伝播する速さ  $v$  が真空中より遅くなることが本質的に重要である。Maxwell 方程式から波動方程式を導くと、電磁場という波動の伝播する速さの2乗は  $v^2 = c^2/\epsilon$  と定義される。ここで、 $c$  と  $\epsilon$  はそれぞれ真空中の光速、物質の誘電率である。ここで、屈折率を  $c/v$  と定義すると、 $n^2 \equiv \epsilon$  と

なる。一方、Maxwell 方程式から  $\left( \frac{ck}{\omega} \right)^2 = \epsilon$  が得られ、結局、光の分散

関係として  $\omega(k) = \frac{c}{n} k$  が得られる。

媒質中の光の伝播の速度が  $c/n$  になることについて興味ある考察が E.Lalor によってなされている。この短い論文から、局所場を考慮した屈折率と分極の関係を示す実験式、Clausius-Mossotti の式（誘電率で書いたものは Lorentz-Lorenz の関係式）は、「媒質中に均質に分布する局在した微視的分極から放出される電磁場は光速  $c$  で媒質中を伝播し、観測点での場は遅延時間を考慮したその重ね合せによって表わされ、それがその点に及ぶ外場と完全に打ち消されるはずだ」という境界条件（Ewald-Oseen の打ち消し定理）のもとに得られることがわかる。

E.Lalor, Optics Commun.1(1969)50,

"A Note on the Lorentz-Lorenz Formula and the Ewald-Oseen Extinction Theorem"

プリズムが屈折率の波長依存性を利用する道具であることからわかるように、屈折率は光の周波数に依存する。それがどのようなものであるか、そして、物質の中で光がどのような運動をするものかを知るためには、光が物質にどのような働きをするものかを微視的に理解する必要がある。

H.A.Lorentz は物質を電荷を持った古典的な調和振動子の集合と考え、それが電磁場の及ぼす力によって強制振動させられる状況から、屈折率の起源を微視的に論じた。これは色々な教科書に詳しいのでここでは省略するが、重要なことは物質固有の力学系と光との相互作用によって力学系で発生する分極が、Maxwell 方程式を同時に満たすように運動すると考える点である。

課題： 次のラグランジアンをつかって、分極と光の運動についての連立方程式を導

け。 
$$L = \frac{1}{2}(\dot{x}^2 - \omega_1^2 x^2) + \frac{1}{2}(\dot{y}^2 - \omega_2^2 y^2) - g\omega_2 xy$$

さて、分極の運動を表現する調和振動子の運動を妨げ、そのエネルギーを別の自由度に散逸させる摩擦の効果を無視すると、巨視的な分極に対する方程式は  $\ddot{\mathbf{P}} + \omega_0^2 \mathbf{P} = \frac{e^2}{m} \mathbf{E}$  となる。ここで、 $\omega_0$  は振動子の共鳴周波数、 $e$  と  $m$  は素電荷と質量である。可視光を中心とする光学現象を念頭におくと、ここでの  $m$  は電子の質量となる。入射光の周波数と同じ周波数で振動する解を求めると、 $\mathbf{P} = \frac{Ne^2}{m} \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2} \mathbf{E}$  が得られる。これから誘電率が  $\epsilon(\omega) = 1 + \frac{\omega_p^2}{\omega_0^2 - \omega^2}$  と求められる。ここで、 $\omega_p$  はプラズマ周波数と呼ばれ、 $\omega_p^2 = Ne^2/m$  で定義される。このようにして、このモデルに

よる物質の中での光の分散関係が  $\left(\frac{ck}{\omega}\right)^2 = 1 + \frac{\omega_p^2}{\omega_0^2 - \omega^2}$  と求められる。

課題：この分散曲線の概念図を図示し、その特徴を説明せよ。また、 $\omega_p$  の大きさの違いが曲線にどのような影響を与えるかを述べ、先に課題との関係で物理的意味を説明せよ。

現実の物質では、分極の運動のポテンシャルは一般には非調和項が備わっている。そのため入射光の振幅が大きく、変位が大きくなるとその効果は顕著になる。それは入射光とは違った振動数で振動する分極の励起を生み、これが非線形光学信号の光源となる。

J.J.Hopfieldはこのように光と物質系が連動して運動する系を量子論的に扱い、「ポラリトン (Polariton)」の概念を提案した。

J.J.Hopfield, Phys.Rev.112(1958)1555,

*"Theory of the Contribution of Excitons to the Complex Dielectric Constant of Crystals".*

これは、物質の中では光は、光そのものではなく、それが吸収されて発生する電子の励起状態でもなく、それらが互いに量子力学的にまじりあった新しい量子になるという考え方である。すなわち量子力学的に考えると、物質系と光及びその間の線形相互作用から構成される全系の固有状態を考えるということになる。この概念は、§3で扱う絶縁体や半導体の励起子が分極の起源となっている系でも詳しく実験的に検証がされている。そのため、そのいきさつをここで改めて示す必要はないだろう。そこで、ここでは、それはそれとして尚、詳しく実験で調べる価値のありそうな二つの話題をのべることにしよう。

Hopfield は、この概念が単に古典的な分散理論を量子論に焼き直すだけのものではその利点はないとの認識から、この概念を導入して初めて説明できる光学現象を探った。その一つとして、彼がD.G.Thomasと行った実験とC.H.Henryが更に詳しく行った実験をここで紹介しよう。今どきこんな古い論文をと思われるかもしれないが、時代を超えて示唆に豊んだ実験であると筆者は思っている。

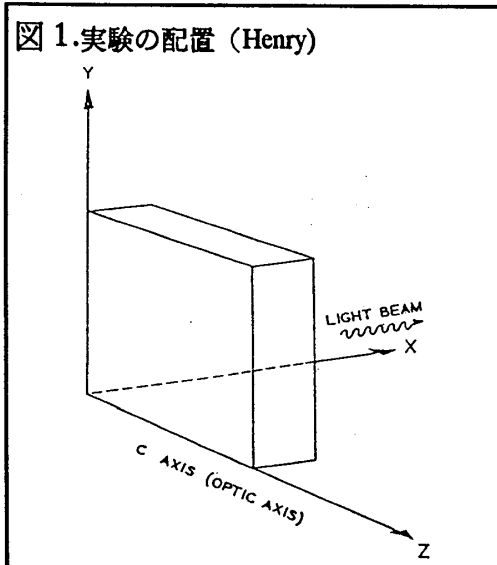
J.J.Hopfield and D.G.Thomas, Phys.Rev.Letters 15 (1965)22,

*"Polariton Absorption Lines"*

C.H.Henry, Phys.Rev.143 (1966)627,

# “Coupling of Electromagnetic Waves in CdS “

この実験は、図1で示すように、結晶に光を入射させ、室温で透過スペクトルを測定するという、真に単純明快なものである。

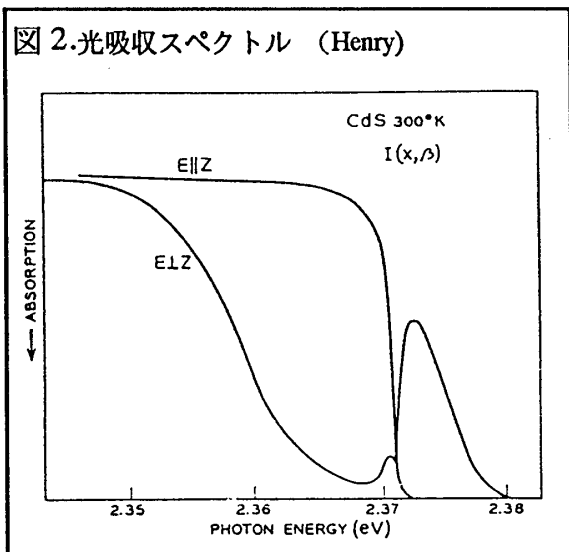


この実験のミソはこの結晶が一軸性で、光の偏光がc軸に平行な場合と垂直の場合で光の分散曲線が異なりある波数でそれらが偶然交叉するいうことを利用することである。図2は各々の偏光に対する光の吸収スペクトルを重ねて書いたものである。両方の分散曲線が交わるエネルギーで奇妙な鋭い構造が現われる。なぜ励起子共鳴から十分はずれた透明な領域で、吸収の様な構造が現われるのか。この説明として彼等は、本来は互いに独立な固有状態である励起子ポラリトンが、この分散曲線が

交差するところではわずかな摂動によって混じりあい、互いにコヒーレントにエネルギーを交換しあうためとした。実際 C.H.Henry の実験では弱い磁場や歪みを試料に加えることによって、この現象がポラリトン間のコヒーレントな相互作用によることを見事に検証している。

この実験は励起子ポラリトンという概念の特徴を明らかに示し、そこでの

光の吸収が、原子の電子準位に共鳴する光子の吸収とは違う様子を表わしている。すなわち、あるモードから別のモードにエネルギーが移動することによって、元のモードのエネルギーは減少するという意味では光の吸収ではあるが、これはエネルギー自身が不可逆的に散逸した訳ではない。もし、元のモードへエネルギーが完全に戻れば、もともとその過程が起ったのか、なにも起らなかったかの区別はできないだろう。このような舞台をもっと



色々な系で見出し、最新の技術で実験的に吟味する価値はないだろうか。パルス光を使った実験が面白そうに思える。さっそく試みてほしいものだ。これまで分極のエネルギーを散逸させるいわゆる減衰の効果には触れずにきた。この効果は、先の古典的な調和振動の方程式に速度に比例する減衰項、すなわち摩擦の効果を加えることによって現象論的に考慮できる。これは数学

的には共鳴周波数を複素数に拡張することになる。しかしながら、更にこの減衰機構を微視的に扱うことは一般には困難である。ここで減衰の起源が主に格子振動の効果であるとしたとき、どのようなことが実際に起きるかについて考察した安藤らの実験を紹介して議論の材料としよう。

T.Ando, M.Hasuo, and N.Nagasawa: phys.stat.sol.(b)179 (1993)453,  
 “Magnetic Field Induced Triplet Exciton Polariton in CuCl” .

塩化第一銅 (CuCl) 結晶は、古くから励起子の研究が盛んに行われ、現在でも多くの研究の舞台を提供している閃亜鉛鉱型半導体である。図3はその最低のエネルギーを持つ  $Z_3$ -励起子と呼ばれる励起子の分散関係を示している。曲線 A,B,C はそれぞれ一重項の励起子によるポラリトンの上枝、下枝及び三重項励起子の分散曲線である。外場のない時には、三重項励起子は光と相互作用を持たず、分散曲線は波数の小さい領域では波数に対して放物線とみなせる。しかし、弱い磁場の下では、図で示したように曲線 B と C が交わる極狭い領域で両者がまじり、分散曲線も挿入図で示した様になる。これは三重項励起子が一重項の成分とまじることによってわずかに光と結合するためである。従って、結合の程度は磁束密度  $B$  の2乗に比例する。

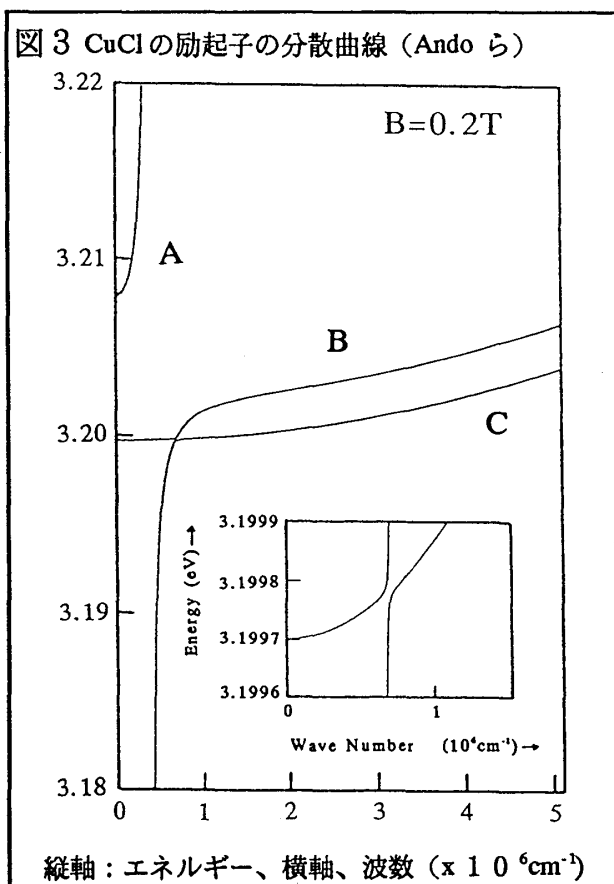


図4は三重項励起子のエネルギーが一重項のポラリトンの分散曲線と交わる狭い付近で、いくつかの  $B$  の値に対する光の透過スペクトルを光子エネルギーの関数で示したものである。 $B$  の増大と共に窪みが増大する様子がわかる。この窪みの部分に対するスペクトルの積分強度を  $B$  の関数として示したものを図5 a,b に示した。a と b の違いは試料の違いである。試料 a では予想通り積分強度は  $B^2$  に比例するが、試料 b では  $B$  に比例する。この様子を明らかにするために、安藤らは2振動子モデルの分散関係を仮定し、波動像に従って理論計算を行った。減衰の効果が大きい場合には  $B$  の小さい領域で  $B^2$  に比例する、

しかし、減衰の効果が小さいか、光との相互作用が大きくなると（この場合は  $B$  が大きい場合に相当する。）  $B$  に比例することが再現された。これから彼等は試料による結果の差が実は減衰の効果の大きさによるものとの解釈を下した。これは光と励起子の結合の程度と減衰の効果の程度との競合によって、励起子による光の分散の様子に質的な変化が起ることを示している。これはポラリトンの概念の妥当性に関する判定基準と矛盾しない[2]。

C.W.Tait は、減衰の原因がフォノンとの相互作用である場合に、波動像と粒子像の二つの立場から励起子による光の分散を論じた。これによると、波動論の立場ではさきほどの判定基準が顕著に見られることが理論的にもあってよいことが示されている。粒子像ではその効果は分散曲線の形状にはそれほど顕著に現われない。

図 4. 三重項励起子の吸収スペクトル (Ando ら)

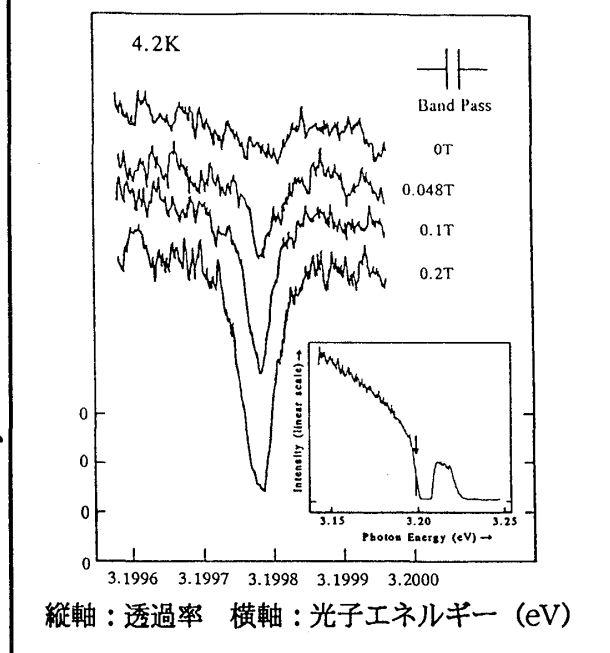
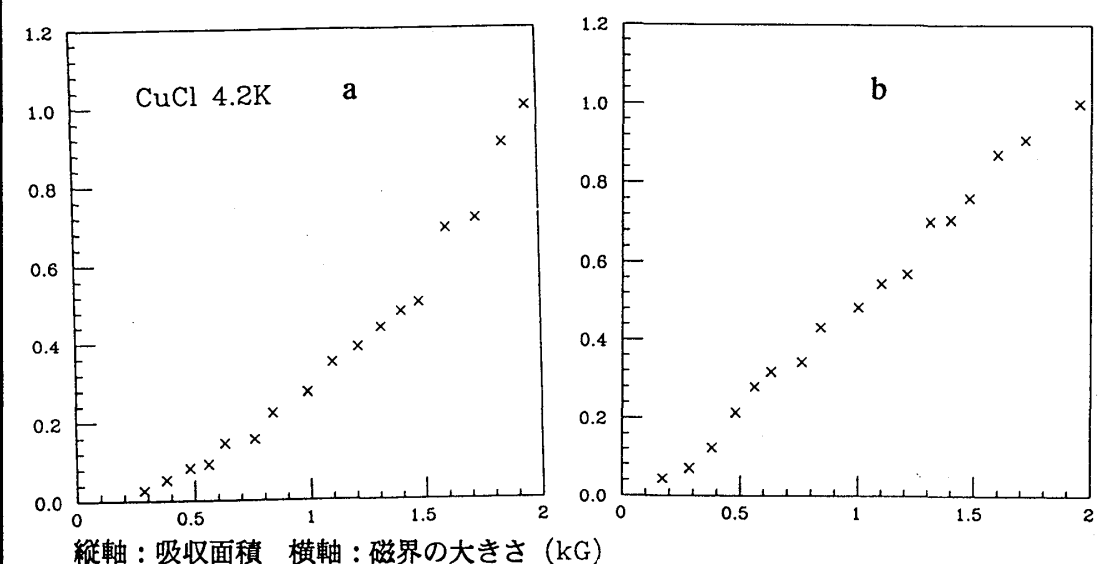


図 5. 吸収面積の磁場依存性：a と b の違いは試料による。(Ando ら)



W.C.Tait, Phys.Rev.B5 (1972) 648,



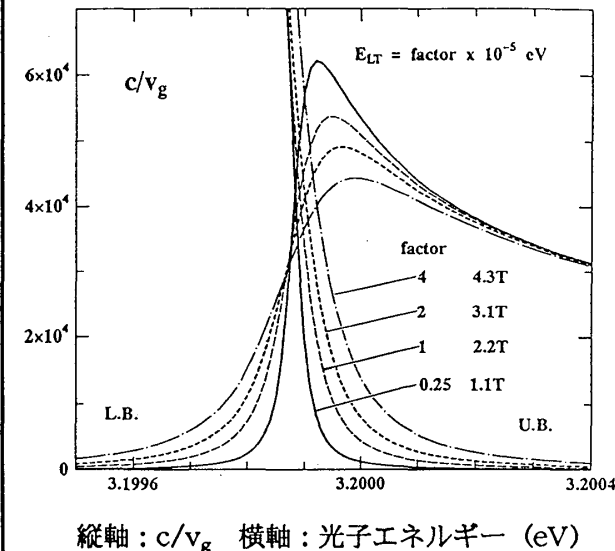
“Quantum Theory of a basic Light-Matter Interaction”

同じ頃、土と伊藤は、図5のbに相当する減衰効果の少ない試料による吸収スペクトルの形状を粒子像に立って解析した。これによると、三重項励起子によるポラリトンの上枝と下枝の群速度のエネルギーに依存するポラリトンの散乱効率スペクトルとしてこの形状が説明できることを示した[3]。

励起子ポラリトンの分散曲線は、光の散乱[4]、パルスを用いる群速度の測定[5]、光の干渉スペクトルの測定[6]、伝播型上・下枝間のコヒーレント・パルス干渉の測定[7]など、色々な方法で求められてきた。しかしながら、C.W.Taitの考察では、波数がはっきりと定義できる様な粒子像がふさわしい実験条件では、準粒子は時間的に減衰し、その寿命がそのエネルギーの虚数部として与えられる。一方、単色の光の透過を観測する様に、エネルギーがはっきりと定義できる波動像がふさわしい場合には、波動の振幅は空間的に減衰し、波数の虚数部が吸収係数を与える。しかも各々の場合に、減衰を考慮すると対応する量子状態の分散曲線が違いうることを示唆している。実験の立場から見ると、この点を十分に念頭に置いた実験が行われているかという点で課題が残っているように思える。先に紹介した実験はそのような観点で更に詳しく吟味する価値があるのではなかろうか。今後、新しい技術によって、色々な物質の精緻な研究が進むにつれて、励起子ポラリトンというすでに十分確立していると思われる概念そのものが再吟味をされ、さらに深められる可能性があるのではないかと感じられる。

ここでは試料の外から入射する光に対する効果だけを述べたが、内部で発生した励起子ポラリトンが光として観測される場合については、なおのこと多くの課題が残されているように思われる。この場合、ボソン系の統計力学として見れば、問題は基本的に非平衡開放系の問題であり、そこには基礎的な問題が多く残されているのではないだろうか。そのような観点を根本的に洗い出す実験がもっとあってよいのではと思われる。

図6. 三重項励起子分散による群速度 (Tsuchi)



### §3. ワニア励起子

絶縁体や低温の半導体結晶では、価電子帯はすべて電子で満たされ、伝導帯には電子は励起されていない。このような状態が全電子系の基底状態となっている。今、外部から弱い光が照射されたとき、一個の光子のエネルギーがバンドギャップ・エネルギーより大きいと、ある確率で価電子は伝導帯に励起され価電子帯には正孔が発生する。このように発生した伝導電子と正孔の対は、それが対としてコヒーレントに準ボース粒子として運動することもありうるが、多くは互いに独立なフェルミ粒子として運動する。しかし、電子と正孔にはクーロン引力が働き束縛状態を形成することがある。このような状態は電子励起の準粒子で励起子 (Exciton) と呼ばれる。電子と正孔の有効質量の大きさが近いと、類似ということでは、励起子は水素原子というよりもポジトロニウムに近い。

この励起子の存在は、この準粒子が光で直接励起される時に観測される光吸収スペクトルから実証されている。ここでは電子と正孔に実効的な引力が働き緩やかに束縛して運動する状態を記述するのにふさわしいワニア励起子だけを話題としたい。

ワニア励起子の運動は水素原子の陽子を正孔で置き換えたハミルトニアンで近似的に記述できる。従って電子と正孔の相対運動のエネルギーは、主量子数  $n$  の自乗に逆比例することが期待される。又、波動関数は電子と正孔の波動関数およびそれらの相対運動の波動関数の積で表わされ、重心運動の波動関数は結晶の並進対称性を反映して、電子と正孔の波数のベクトル和の波数で特長づけられる平面波となる。詳しくは教科書を参照されたい。

R.S.Knox, "*Theory of Excitons*" in Solid State Physics, Suppl.5 (Academic Press, New York, London 1963).

ワニア励起子は1930年代に理論的に予言されたが、実際にそれが実証されたのは戦後まもなくのことである。ロシヤのE.F.Grossらと日本の林らが半導体の亜酸化銅 ( $\text{Cu}_2\text{O}$ ) においてそれを成功させた。以下この物質を例に、この励起子の姿を紹介しよう。

M.Hayashi and K.Katsuki, J.Phys.Soc.Japan 5(1950)980,

"*Absorption Spectrum of Cuprous Oxide*" .

E.F.Gross, suppl.vol.III, series X. Nuovo Cimento 4, (1956)672,

"*Optical Spectrum of Excitons in the Crystal Lattice*" .

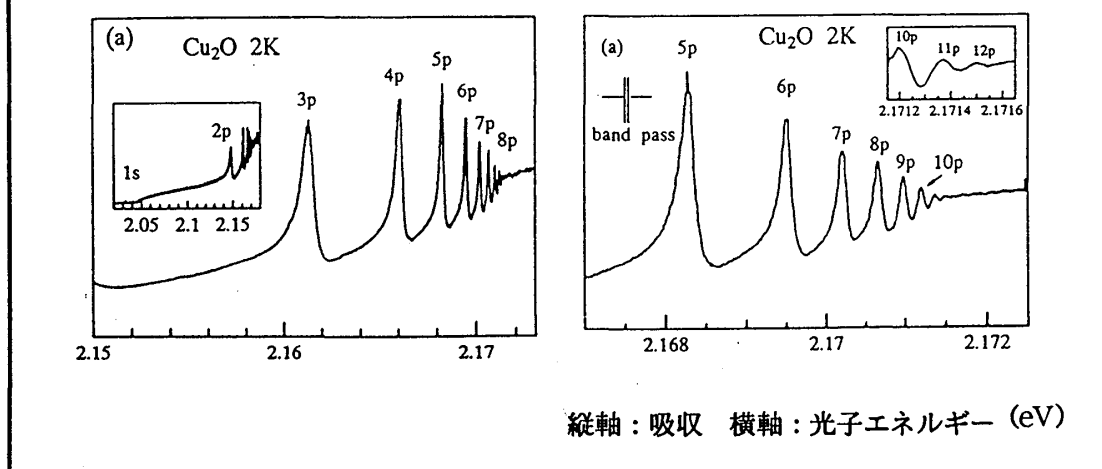
林らによる先駆的な研究は、その後我が国でのワニア励起子の研究に欧米程のインパクトを与えなかった様である。その理由は、当時の絶望的とも思える実験科学の研究環境と励起子を実験的に今こそ検証しなければならないという意識における民族性の違いによるようにも思える。

亜酸化銅はセレンと共に典型的な半導体として古くから整流器の材料として知られていた。これらの物質が固体の電子論や今日の半導体デバイスの基礎を築く上で果たした役割は多大である。この物質は金属銅を適当な温度で酸化したり、化学的に合成した亜酸化銅をゾーン融解法で結晶化したり、アフリカなどいわゆる銅ベルト地帯で天然に産出される赤銅鉱をそのまま使うなどして、光学研究の試料として使われてきた。この結晶には反転対称性があり、色々な準粒子のパリティが保存する。

図7は、最低の励起エネルギーを持つ黄色系列の励起子の光吸収スペクトルの例である。この様なスペクトルは励起子の特長を示すものとして大抵の固体物理の教科書に出ている。鋭い吸収列が $n=12$ まで見事に現われ、そのエネル

図7.  $\text{Cu}_2\text{O}$  黄色励起子の1光子吸収スペクトル

(Matsumotoら)



ギーを調べるとみごとに水素様系列になることがわかる。しかし、各吸収スペクトルの形状が対称ではないため、ピークの位置が共鳴エネルギーを正しく表わさないが、とにかくこれほど大きな主量子数まできれいに吸収系列がみられる例は少ない。中村らによって詳しい研究が進行している  $\text{ZnP}_2$  の励起子はもう一つの例である[8]。

M. Matsumoto, K. Saito, M. Hasuo, S. Kono and N. Nagasawa, Solid State Commun. 97(1996)125,

"Revived Interest on Yellow-Exciton Series in  $\text{Cu}_2\text{O}$ " .

さて、亜酸化銅の励起子についてはこれまで数え切れない研究がされており、もう解明すべき課題が残されていないのではないか思える。ところが、今でも水素原子の分光学的研究が精力的に行われ、そこで陽子の半径を評価するというような基礎的な研究が実際に行われている。アルカリ原子の物理もますます活況を呈している。一つの単純な例を示し、この物質の黄色励起子の持つ魅力を議論の材料としよう。

R.J.Elliott は、パリティの保存するこの系での特徴を考慮して、この励起子系列の対称性と関連する光遷移の選択則、および遷移確率を論じた[9]。これによると、この物質の最低のバンド・ギャップを構成するバンドの対称性とパリティを反映して、電気双極子による1光子遷移は、電子と正孔の相對運動の波動関数（エンヴェロップ）が p 関数である励起子系列に対して許容となることを示した。これから、電気双極子による2光子吸収過程では s 型や d 型の励起子への遷移が許容になることがわかる。

課題：亜酸化銅の励起子の光吸収過程において、電気双極子相互作用による1光子と2光子吸収の選択則が相補的になる理由を簡単に考察せよ。

ところで、教科書によると、s 型励起子が1光子遷移許容な系では、吸収スペクトル構造の積分強度（遷移確率）は主量子数  $n$  の3乗に比例することになっている。これまでこれをそのつもりで検証した実験例はあるのだろうか？

黄色励起子の s 型励起子の電気双極子による2光子遷移確率も励起子のエンヴェロップ関数の絶対値の自乗に比例する[10]から、これを直接検証できるのではないだろうか？これまでに黄色系列励起子の2光子分光は D.Frohlich らが行ったことがある。しかし、当時の彼等の興味は構造のエネルギーにあり、吸収強度には触れられていなかった。

D.Frohlich, R.Kenklies and Ch.Uihlein, Phys.Rev.Letters 43(1979)1260,  
"Assignment of the Even-Parity Excitons in Cu<sub>2</sub>O"

図8は中らの最新の測定結果の例である。図7の1光子の吸収スペクトルと違って、s 型や d 型の励起子による構造が  $n=7$  まで見える。一般に発光の励起スペクトルは、吸収スペクトルを反映している。しかし、その形状は吸収強度を直接表しているのではなく、それにその発光をおこす過程の効率がかかっている。更に、一般的には励起光の試料表面での反射率など考慮すべき要素が多くある。つまり、励起スペクトルから吸収スペクトルを推し

量るのは普通はあまりやりたくないことである。

しかしながら、図7とこの図を比較すると明らかなように、二光子スペクトルでは各構造が単純で、一光子スペクトルのように別の起源による構造が重ならない、そのため吸収スペクトルの強度の評価にも見えそうに見える。中の最近の解析では、結晶に熱処理をしないときは、励起子の発光による励起スペクトルの  $n=8$  までの各構造の積分強度の  $n$  依存性は  $n^3$  にならない。ところが熱処理をすると、理論的に予想される

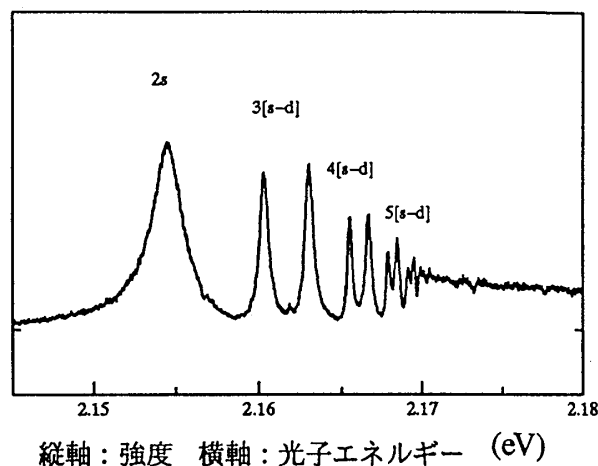
$n^3$  に非常に近くなることを発見した[11]。また、束縛励起子の発光では熱処理しなくても  $n^3$  となることも分かった。今のところ熱処理の効果がどのような励起子の緩和過程に関係しているかという機構の解明は出来てはいないが、s 型エンヴェロープ関数を持つワニア励起子の波動関数から予想される遷移の強度依存性が詳しく実験的に検証されたのではないかと考えている。もしそうなら、長い励起子の歴史においてこれが恐らく初めてなのではないかと思われる。

このように教科書では当然のことと書かれていることで、実は実証されたことのないものが外にも案外あるかも知れない。また、それを確認する過程で思わぬ副産物を発見できる楽しみもありそうだ。筆者の研究室では、この励起子系を対象として、あたりまえと思われる事実を再検討する作業を進めているが、調べれば調べるほど、不思議な現象が見方や手段を選べば見えてくるという経験をしている。最先端を駆ける研究ではないかも知れないが、大学での小規模な研究としては意味がありそうである。

この節の終わりに、励起子の軌道半径について触れておこう。図7で示したように、亜酸化銅の黄色系列では  $n$  が大きな励起子が観測される。先に紹介した簡単なモデルでボーア半径を見積もると約  $7 \text{ \AA}$  となることが知られている。従って軌道半径は  $n$  が増えたと  $n^2$  で増大する。因に  $n=12$  とすると、この物質の軌道半径は約  $0.1$  ミクロンになる。最近の微細加工の技術水準がこの物質にも適応できるようにできたとすると、色々な面白い現象を確かめられるのではないだろうか。

一方、原子の物理学では俗にリドベルグ原子という極めて大きな軌道半径

図8.  $\text{Cu}_2\text{O}$  黄色励起子の2光子励起スペクトル (Naka ら)



をもつ原子の励起状態が存在し、色々な研究が行われるようになって久しい。このように大きな軌道半径を持つ粒子は当然外力に弱く、最初は宇宙空間で見つかったというのも納得できる。軌道が巨大になるとその軌道にある電子の運動は限りなく古典力学に従うようになる。事実、最近では電子の軌道における電子の運動を時間的に測定できるようになっている。このような事実を参考にとすると、励起子の場合でも何かうまい工夫によって巨大な軌道の励起子を長時間生かしておくことが将来できるのではないかと期待も湧く。

## § 4. 励起子分子

励起子分子は、光子密度の高いレーザーの様な光源によって試料を照射して励起子の密度を高くしたときに、もし励起子間に引力が働くと形成される。普通は励起子が水素分子のように2個結合したものを指すが、言葉の意味から必ずしも2個でなくても良い。その意味で2個のものを Biexciton と呼ぶ習わしもある。ここではそれを励起子分子と呼んでおく。

この種の研究は符号の逆な電荷を持った粒子の束縛状態の研究という、固体物理に限らない意味での理論研究から当初始まった。しかし、レーザーが分光研究に本格的に使われるようになった1970年代から盛んにこのテーマの研究が盛り上がった。励起子分子は A.Mysyrowicz らによって塩化第一銅(CuCl)という半導体で初めて発見された。

A.Mysyrowicz, J.B.Grun, R.Levy, A.Bivas, and S.Nikitin, Phys.Letters 26A(1968)615,  
"Excitonic Molecule in CuCl"

その後、これが2光子過程で効率よく作れるという後述の花村の理論と G.M.Gale ら[12]や筆者ら[13]の実験的検証によって、これにまつわるさまざまな光学現象、特に非線形光学現象の研究が爆発的に進歩した。その様子はいくつかの総合解説があるため、それをここで述べることはしない。ここでは、花村のいわゆる励起子分子の巨大2光子吸収の理論とその後の進歩を簡単にたどるにとどめたい。特に、ある現象を説明するための複数の理論的予想がどの程度定量的に実験で検証できるものかという話題に限ろう。なお、この問題は第2節の主題と密接な関係を持つことをあらかじめ予告しておこう。

E.Hanamura, Solid State Commun.12(1973)951,  
"Giant Two-Photon Absorption due to Excitonic Molecule"

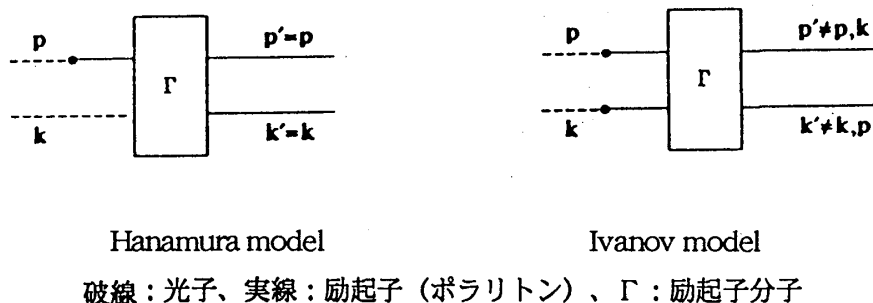
花村は先の論文で励起子分子の巨大2光子励起過程について考察し、その効率が極めて高いことを理論的に予測した。その理論によれば、励起子分子はまず1個の光子によって励起子が作られ、その励起子がもう1個の光子と相互作用してできるという。原子の1個の電子が2光子吸収する場合では、まず1個の光子が電子と相互作用し、同じ電子がもう1個の光子と相互作用することによって終状態に励起される。励起子分子の場合は2個目の光子が相互作用する電子は、1個目の光子が相互作用した電子である必要はなく、最初に作られた励起子を中心として励起子分子の体積に相当する範囲の基底状態の電子であ

ればよい。そのため、原子の場合に比べて、その体積は大きいので効率も原子の場合に比べて圧倒的に高くなるという訳である。これは不純物に束縛される励起子の遷移確率が高くなるという巨大振動子効果の一種であり、この考えはロシアの Gogolin によって同じ頃理論的に提起されたものでもある。一方、励起子分子の束縛エネルギーが小さいため、中間状態となる励起子のエネルギーが関与する1光子のエネルギーに近くなり、それによる大きな共鳴効果も加わる。

この考えはそれ以来標準的な理論として定着し、多くの関係する研究の基礎となった。しかし、よく考えると少し奇妙なことが起ることが予想される。励起子分子の体積は2つの励起子の束縛する力の程度によって決定される。強い力で束縛すれば小さい励起子分子になり、弱い力で束縛すれば大きなものとなりそうである。では十分に弱く束縛する極限ではどうなるだろう？ 励起子分子の体積は無限に大きなものとなる。もしそうなら2光子吸収の効率は発散してしまう。発散が出てくれば、何らかの理論の改良が必要だと思うのは人情である。しかし、最近までこのことを詳しく吟味する気運は生まれなかった。

この問題を正面から検討し直そうという提案が、ロシアの A.Ivanov が中心となってなされた。彼等の主張によれば、この過程はまず2個の励起子ポラリトンが2個の光子から同時に作られ、それがポラリトンの励起子成分を通じて相互作用することによってある有限の時間束縛状態を形成し、やがて再び励起子ポラリトンの対に分解すると考えるべきだというものである。ここで同じスピンを持つ励起子間には斥力が働き、逆スピンの場合には引力が働くことを彼等は提案した。この考えと花村による考えの違いを比較すると、図9のようになると彼等は主張した。このダイアグラムから終状態と始状態のポラリトンを見ると、花村モデルでは初めと終わりが同じモードの光になる。彼等はこれは Hopfield の述べた光の吸収に関する定義[14]に矛盾するとした。しかも、彼等の考えでは先程の発散が避けられると主張した[15]。

図9. 励起子分子の2光子吸収過程を示す理論の違いを示すダイアグラム





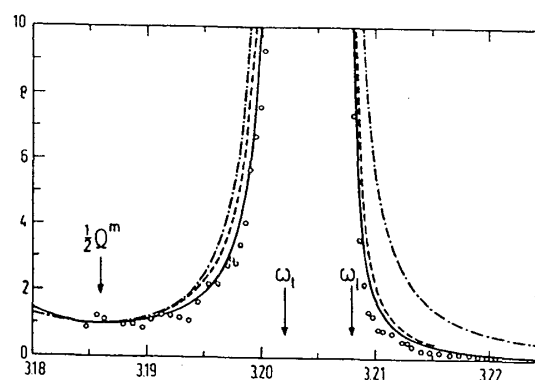
筆者がこの考えに興味を持ったのは、とにかく二つの理論で予想される励起子分子の二光子吸収の効率の違いが実験的に十分判別できるほどであり、しかも、それらを実験で定量的に比較できるに便利な理論の構造になっている点であった。一般に違う理論を実験で定量的に比較する必要があるとき、理論家が各々の便利と美学で最終的な結果を導く傾向があり、他の理論との比較を論文でわかりやすく示す例は多くはない。その意味でこの理論は真に実験をする側にとって親切なものであった。

さて、どちらが実情にあっていのかは実験で試して見るのが一番である。そこで彼等との共同研究によって見極めることにした。彼等は当然自分たちの考えが正しいことを主張するはずである。実験をする立場では、最初からどちらかの考えに荷担することは出来ない。その態度を終始貫くには、どれだけ精度が良く再現性が保証できるデータを出すことができるかにかかっている。これは実験技術を磨くには格好の機会である。

蓮尾は、レーザーをこの定量的な研究に耐えうるように改良し、光吸収を原理としては極めて簡単でありながら非常に精度よく測定できる実験方法を開発した。それを使って CuCl 結晶での実験を行ったのである。その方法の子細はここでは省略し原論文に譲るが、結局理論の比較に耐えられる結果を出すのに成功した。図 10 はその結果を示したものである。これから、少なくとも良質の CuCl の試料で、励起子ポラリトンのモデルがふさわしい状況では、花村のモデルよりも Ivanov らのモデルのほうが実情にあっていとの結論が得られる。

彼等のモデルに立った励起子分子の姿は図 11 に示した。一般に入射光によって 2 個の励起子ポラリトンが励起され、それがエネルギーと波数を保存しながら散乱を繰り返し（相互作用し）最終的には再び別の励起子ポラリトンの対に分解する。従って入射光のモードにかえるものは少なく、結果的に入射光にとっては吸収として観測されるのである。

図 10. CuCl の励起子分子の 2 光子吸収効率 (Ivanov ら)



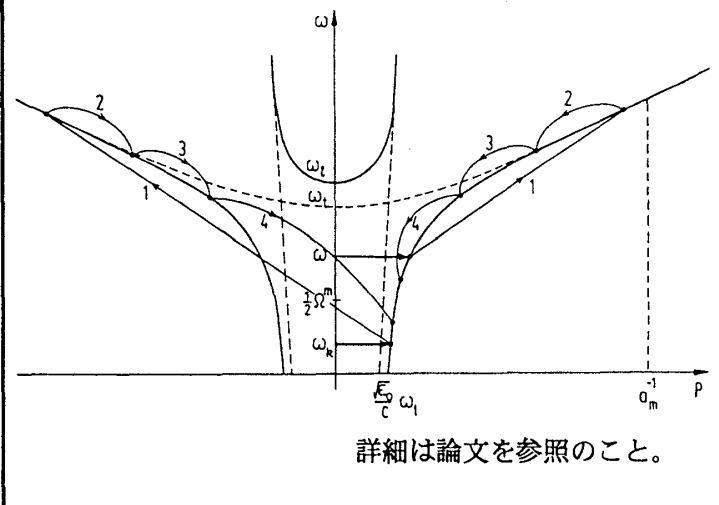
縦軸：規格化した 2 光子吸収帯の面積  
横軸：光子エネルギー (eV)  
実線：Ivanov, 一点鎖線：Hanamura

A.L.Ivanov, M.Hasuo,N.Nagasawa and H.Haug:Phys.Rev.B.52(1995)11017,

*“Two-photon generation of excitonic molecules in CuCl:An exactly solvable model and high precision experiments ”* .

CuCl では、もっと高い  
 次数の色々な共鳴非線形光  
 学信号が励起子分子の2光  
 子共鳴によって発生する。  
 これらの効率を定量的に論  
 じるときには、これら二つ  
 の理論の違いがより大きく  
 現われることが予想される。  
 また、励起子ポラリトンの  
 モデルがあまりふさわしく  
 ない減衰効果が大きな系で  
 どのようになるかは今後実  
 験的研究の課題として残さ

図 1 1. Ivanov らのモデルによる励起子分子の 2 光子過程 (Ivanov ら)



れている。詳しい温度効果を測定し直すのも面白いかもしれない。それによって、励起子分子の2光子過程に関する総合的な理解が深まるものと期待される。

励起子分子に関しては、最近は色々な内部自由度に関する輻射崩壊過程が徳永ら[16]によって観測され、励起子分子に関する知識が再び急速に深まりつつあるとの印象がある。これまで励起子分子の物理はどちらかというと CuCl に偏りがちであったが、別の物質の知見から更に新しい方向に発展する可能性は極めて高いと思われる。なお、ここで話題とした励起子分子に関しては最近総合報告が出版された。

A.L.Ivanov, H.Haug, and L.V.Keldysh, Phys.Reports 296 (1998) 237,

# *“Optics of Excitonic Molecules in Semiconductors and Semiconductor Microstructures”*

## § 5. 励起子系のボース・アインシュタイン凝縮 (BEC)

励起子や励起子分子は偶数個のフェルミ粒子から構成された準粒子である。従って、希薄な気体では近似的にボース粒子とみなしてよい。このような準粒子が、BEC を起こすものかという問題は以前から興味を持たれ、色々な試みがなされてきた。1995年に冷却・捕獲された希薄なアルカリ原子系で BEC が実現され、現在ではこの現象が現実の巨視的量子現象としてあらためて多くの関心と呼ぶことになった。ここでは励起子や励起子分子という準粒子系での BEC の研究が持っている固有の面白さを紹介したい。

統計力学の教科書にあるように、BEC とはボース粒子系が絶対零度又は有限温度でもある臨界濃度以上になると、巨視的な数の粒子が最低のエネルギーを持つという量子力学的相転移現象である。この現象は、A.Einstein が光子の統計に関する理論を質量のある粒子の統計に発展させたときの必然の結果として理論的に予言したものである[17]。この現象の重要性には彼自身はそれほど興味を持たなかったそうだが、その後 F.London が液体ヘリウムの超流動現象を説明する際に導入して大いに見直されたというものである。この現象はかいつまんで述べると次のようになる。

粒子の総数  $N$  が決まっている 3 次元の理想ボース気体が温度  $T$  で熱平衡にあるとき、この気体の密度  $\rho$  は、

$$\rho = \frac{g}{4\pi^2} \left( \frac{2m}{\hbar^2} \right)^{\frac{3}{2}} \int_0^\infty d\varepsilon \frac{\varepsilon^{\frac{1}{2}}}{e^{(\varepsilon-\mu)/kT} - 1} \quad \text{となる。ここで } m \text{ と } g \text{ は粒}$$

子の質量とスピン多重度、 $\varepsilon$  と  $\mu$  は粒子の運動エネルギーと化学ポテンシャルである。今、この温度でボース粒子 ( $g=1$  とする) の密度を増やし、

$$\rho_c \equiv \frac{2.612}{(4\pi)^{\frac{3}{2}}} \left( \frac{2mkT}{\hbar^2} \right)^{\frac{3}{2}} \quad \text{で定義される臨界密度を越えると、その後に系に付}$$

け加えられた粒子が全て  $\varepsilon=0$  の最低状態になり、運動量空間で波数ゼロの状態に凝縮する。

この温度における粒子の平均の運動エネルギーから決まる運動量をド・ブロイ波長に換算した、いわば 1 個の粒子の半径の目安、熱的ド・ブロイ波長  $\lambda$

$$\lambda = \frac{h}{\sqrt{2\pi mkT}} \quad \text{を定義し、先の式をこれを使って書き直すと } \rho \lambda^3 \sim 2.612$$

において BEC が起こることがわかる。この左辺は 1 個の粒子の体積に粒子の密度をかけたものであるから、それが平均として 2 から 3 個以上になるとは、気体の全体積の全ての場所で粒子が重なることになり、それが BEC の臨界条件と

なる。

粒子の間に弱い相互作用が働く場合にも、もしそれが斥力の場合には BEC は起こる。しかし、この場合は絶対零度でも有限の運動エネルギーを持つ粒子が残される。一方引力が働くと、粒子は実空間で集まり分子をつくり、もはや元の粒子の気体は保てない。そのため BEC は起こらないと考えられてきた。しかし、極めて低い温度まで運動エネルギーを減らし、ド・ブロイ波長を長くすると、リチウム原子系のように、原子間に引力が働く気体でも BEC が起こる場合がある。従って相互作用の種類だけでは判定できないこともわかってきた。

このように理論的に考える限りこの現象は必ず起こるべきもので、これまで見つからなかったのがむしろ不思議と思えるかもしれない。従って、アルカリ原子の BEC も起こるべくして起こったとだけだということそんなものではない。なぜなら、実際には原子の運動エネルギーを極端に抑え、空間的に冷えた原子を閉じ込めるといふ、研究者の英知の結集した技術の開発なしにはできなかったのである[18]。なぜこんなに長い時間が必要だったのか。なぜ日本で成功できなかったのかを歴史的に考察することは意義があろう。

課題：10<sup>9</sup>K におけるナトリウム気体の原子の平均速度を計算せよ。励起子の有効質量を電子の静止質量の5倍として、1K での励起子の平均速度を計算せよ。

話を励起子系に移そう。そもそも励起子系で BEC が本当に起こるものかどうかは大問題で、誰も答えられない未知の課題である。従って、ここではもし起こるとして、それをどうして作り、観測できるものかという実験的な側面を眺めることにしよう。励起子系は程度の差こそあれ光との相互作用を持つ、これがこの系の BEC 研究を豊かなものにしており、また、将来性が期待される由縁でもある。以下では、BEC がよく研究されてきた亜酸化銅の励起子から始めて、その後で CuCl の励起子分子の BEC の話題に触れよう。

とにかく、もし BEC が起これば、励起子の分散曲線の波数ゼロ（運動量がゼロ）の状態に巨視的な数の粒子が集まるはずである。これを光学現象を使って知る方法は、その励起子が輻射崩壊するのであればその光を観測したらよさそうである。しかしながら、光子（ポラリトン）は運動量を持っているために、1光子過程で輻射崩壊するには運動量保存が成り立たない。従って、もう1個の光子（ポラリトン）乃至別の自由度の量子の助けが運動量ゼロの励起子の輻射崩壊には必要である。この事情はポジトロニウムの $\gamma$ 線崩壊の例と同じである。

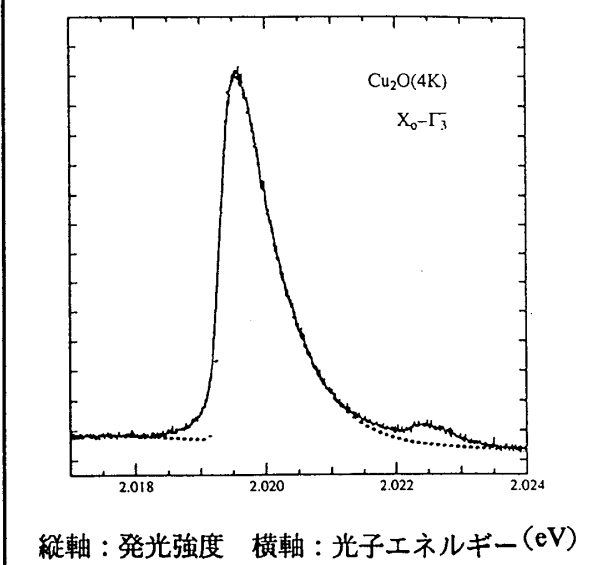
亜酸化銅の励起子の場合は、光学フォノンとの相互作用の結果発生するルミネッセンスのスペクトル形状の解析が BEC 探しに使われる。簡単にその原理

と問題点を述べよう。ある温度  $T$  で励起子系が熱平衡（そもそも励起子は電子の励起状態の量子であるから、本質的には有限の寿命を持つ。したがって、その寿命のうちに十分に熱浴と相互作用して、準熱平衡とみなせるような状況にある場合というのが適当である。）にあるとする。亜酸化銅の場合は幸いある光学フォノンのエネルギーが殆ど波数に依存しないという事情を考慮すると、特定の波数を持つ励起子からの発光スペクトルは、

$I(\varepsilon) = g(\varepsilon) \cdot \sqrt{\varepsilon} \cdot f(\varepsilon, \mu, T)$  となる。ここで、 $\varepsilon$  は励起子の運動エネルギーで、観測される発光の光子エネルギーから理論的に予想される対応する励起子の波数ゼロでのエネルギーの差に相当する。また、 $g(\varepsilon)$  はフォノンと励起子の結合因子で一般には励起子の運動エネルギーに依存する。亜酸化銅の場合はこれがエネルギーに依存しないと信じられているが、本当にそれでよいのかは実験で十分に確かめられてはいないと思われる。 $\varepsilon$  の平方根は状態密度、 $f$  はボース分布関数である。もし、 $\varepsilon=0$  に巨視的な数の励起子が集まれば、 $I(\varepsilon=0)$  に鋭い発光が見えるのではないか。これが古くからいわれてきた、BEC の見つけ方である。

図 1 2 は亜酸化銅のオルソ励起子と呼ばれるものの 1 LO-発光のスペクトルの例で、この発光の形から励起子系の温度と密度が決定される。光で電子と正孔を作り、それらが結合して励起子になるときに発生する余分のエネルギーは励起子の運動エネルギーになるが、そのような作り方で作った熱い励起子系では、励起子の密度が高くなると温度も上がり、BEC が起こったと誰もが納得する実験結果は報告されていない。

図 1 2.  $\text{Cu}_2\text{O}$  のオルソ励起子の 1 LO フォノン・サイドバンド



課題：この方法には一つ本質的な問題

があることが知られている。亜酸化銅のオルソ励起子は四重極相互作用によって光と相互作用し、弱いながらもポラリトン効果を示すことが実験的に詳しく実証されている。もし、この効果を考慮すると、先にフォノン・サイドバンドの形状はどのように変形すると予想できるか、定性的に考察せよ。

亜酸化銅の励起子には光と相互作用しないパラ励起子がある。これはオル

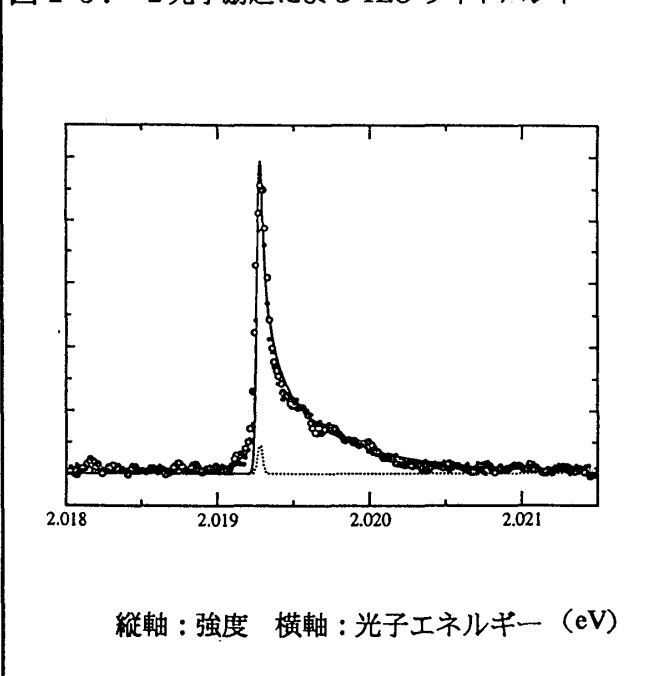
ソ励起子と同様、フォノンの放出を伴って発光をする。この励起子は光と相互作用しないだけ寿命も長く、この発光の解析から BEC が起こったとされる実験が名高い[19]。しかし、パラ励起子の寿命は実験例によって何桁も値が違ったものが報告されており、観測結果の再現性に疑問を持つ向きも多いのが現状である。より詳しく地道な実験の積み上げが望まれよう。また、吟味すべき問題も理論的に指摘されている。

筆者らは熱い励起子系が冷えるのを待って BEC を作る方法は、励起子の寿命が概して短いことから実用的ではないと考え、直接波数ゼロに近い冷えた励起子を最初から作る方法を考えた。これは後で触れる CuCl の励起子分子の場合に使った方法を流用したものである。これは  $\varepsilon=0$  のオルソ励起子のエネルギーの半分に相当するレーザーの光を正面衝突させ、運動量を打ち消しながら  $\varepsilon=0$  の励起子を作ろうというものである。

図 1 3 は中らによる実験例で、図 1 2 とは違ったスペクトル形状が見られる。確かに  $\varepsilon=0$  の励起子の発光に相当する位置に鋭い発光線が見られる。申らはこれと同様の  $\varepsilon \sim 0$  の励起子による発光の時間分解スペクトルを観測すると、この鋭い発光線が長時間生き延びることを報告し、BEC が起こっていると結論した[20]。一方、中らは高分解分光法をつかって、この鋭い発光線の詳しい研究を行っているが、それによると 2 光子励起による LO フォノンによるハイパーラマン散乱 (TRRS) 線が観測され[21]、このようなコヒーレントな共鳴光学過程と励起子の BEC に伴って新たにみられる発光線との見極めにはしばらく時間が必要だろう[22]。

さて、フォノンではなく、別の素励起子によって運動量を保存を満たし、 $\varepsilon=0$  の励起子を輻射崩壊させる方法はないだろうか？ 先の問題で触れたように、亜酸化銅のオルソ励起子は四重極遷移で一光子発光をする。しかし、 $\varepsilon=0$  の励起子については先に述べた理由でこの過程は禁止される。しかし、実際には  $\varepsilon=0$  の励起子を選択的に作ったつもりでもこの発光は観測され、 $\varepsilon \sim 0$  ながらも  $\varepsilon=0$  ではない励起子が相当励起される過程があるのかもしれない。

図 1 3. 2 光子励起による 1LO サイドバンド



ここで V.A.Gergel らの古い論文を紹介しよう。これは励起子が斥力の弱い相互作用をしているとして、それによって発生する励起モードの量子の励起を伴う発光線から、BEC を見つけようというものであり、今後もっと実験的な検証を試みる価値があるように思える。

V.A.Gergel, R.F.Kazarinov, and R.A.Suris, in Proceedings on 9th I.C.on Semiconductor Physics vol.1., Moscow, 1968,

*“On the properties of the low density Bose-Einstein Condensate of the excitons in semiconductors”*

最後に、亜酸化銅に先立ち BEC を探した筆者らの CuCl 結晶での励起子分子の実験を紹介しよう。考え方は励起子の場合とほとんど同じである。亜酸化銅の場合と異なり、励起子間には引力が働き、励起子分子が安定に作られる。この励起子分子を 2 光子励起して  $\varepsilon=0$  の冷たい励起子分子を作ったのである。この場合、 $\varepsilon=0$  の粒子が二つの励起子ポラリトンに分解する過程が利用される。この光学信号は通常は位相共役波というもので、この強度は  $\varepsilon=0$  の励起子分子の数に比例する。結果の子細はここでは示さないが、 $\varepsilon=0$  の励起子分子の数をこの信号で監視しながら、熱い励起子分子を別の光で供給すると、全体の粒子の数がその温度での臨界密度に達したときに、信号強度が 100% 増大し、そのスペクトルも鋭くなる。これは蓮尾による多数の試料で繰り返し行われた粘り強い実験から明らかになったことである。

M.Hasuo and N.Nagasawa, in *“Bose-Einstein Condensation”* Eds.A.Griffin, D.W.Snoke and S.Stringari, Cambridge Univ, Press, 1995

*“BEC in Biexcitons in CuCl”*.

この現象は単に数が増えただけでなく、そこにコヒーレンスが增強されたと見ることが出来るのが重要である。BEC に関連させてコヒーレンスとのかかわりを実験事実に基づいて議論したのは、これが初めてではないと思われる。BEC では単に  $\varepsilon=0$  に沢山の粒子が集まるというのではなく、それが位相が定義できる一つのコヒーレントな量子状態になることが本質的であるということ。この実験は改めて意識させることになった。また、Gergel らが評価しているように、BEC ができると不純物による粒子の散乱効率が変化し、ちょうど光におけるレイリー散乱と類似の機構と形態をもつ光が発生することが予想されている。これらの状況は蓮尾らの実験との関係で興味深い。今後もっといろいろな系での研究や筆者らの実験の追試が望まれる。

近年、光学的な測定ではなく、励起子の運動を電氣的に測定する方法が試されており、亜酸化銅の励起子系の超流動[23、24、25]の話題が議論になっている。確かに BEC 探しを光学的な測定に頼って行う必要はなく、もっと色々な方法が提案されてしかるべきだろう。

最後に励起子系の BEC を論じるときに決して忘れてはならない注意を付け加えたい。励起子や励起子分子は有限の寿命を持つ準粒子である。つまりこれも基本的に開放系の問題である。従って粒子数の保存にしても当然条件つきである。このように複雑な状況にもかかわらず、何か巧妙な知恵によって、この面白い量子現象を見つけようとする、それが自然を相手にする面白いゲームなのである。そこでどんな驚きに遭遇できるか？ これがこの研究の楽しみであろう[26]。

なお、最近の原子の BEC 研究の動向は <http://amo.phy.gasou.edu/bec.html> が充実している。専門家向けの最新の情報であると同時に、面白い動画や解説など分野外の人や科学に興味を持つ一般の人にも十分楽しめ、好奇心がそそられる内容である。研究内容をわかりやすく説明し主張する姿勢と努力は大いに学ぶべきである。袷を着た息苦しくて閉じた世界からの脱却は次の世紀の我々の課題だろう。

## § 6. おわりに

この講義では励起子に関係するいくつかの話題を紹介し、見方によって光物性の枠に囚われず色々な物理的概念を広げる研究にも便利かもしれないという切り口を選んでみた。しかし、もちろん、もっと物性に密着した切り口もあり、ここで示したごく限られた物質にさえ興味ある不思議な現象が多数見受けられる。この講義から、アプローチ次第で面白い研究テーマがあるんだなという感じを知っていただければ幸いである。最近はこの分野も大がかりな装置が最先端の研究には必要なのかもしれないが、筆者は納税者の立場から、省エネルギーを第一義に考えたいとの心情も付け加えておきたい。



## 参考文献リスト

- 1] “*Huygen’s principle 1690-1990, Theory and Application*”, ed.s H.Blok et al. North-Holland, 1992.
- 2] J.J.Hopfield, in Inter. Conf.on II-VI Comp. eds. D.G.Thomas, Benjamin, 1967, p.800.
- 3] H.Tsuchi, 修士論文、東北大学、1993.
- 4] T.Mita, K.Soutome, and M.Ueta, Solid State Commun. 33 (1980) 1135 and E.S.Koteles and G.Winterling, Phys.Rev.Lett. 44 (1980) 948.
- 5] Y.Masumoto, Y.Unuma, Y.Tanaka, and S.Shionoya, J.Phys.Soc.Jpn.47 (1979) 1844.
- 6] T.Mita and N.Nagasawa, Solid State Commun. 44 (1982) 1003.
- 7] D.Froehlich, A.Kulik, B.Uebbing, A.Mysyrowicz, V.Langer, H.Stolz and W.von der Osten, Phys.Rev.Lett. 67 (1991) 2343.
- 8] M.Sugisaki, O.Arimoto and K. Nakamura, J.Phys.Soc.Jpn. 65 (1996) 23.
- 9] R.J.Elliott, Phys.Rev. 108 (1957) 1384.
- 10] R.Loudon, Proc.Roy.Soc.(London) 80 (1962) 952.
- 11] 中嶋子ら、日本物理学会 53 回年会講演概要集、p.213、1998.
- 12] G.M.Gale and A.Mysyrowicz, Phys.Rev.Lett. 32 (1974) 727.
- 13] N.Nagasawa, N.Nakata, Y.Doi, and M.Ueta, J.Phys.Soc.Jpn.39 (1975) 987.
- 14] J.J.Hopfield, Phys.Rev.112 (1958) 1555.
- 15] A.L.Ivanov and H.Haug, in Tech.Digest of IQEC’92, Vienna, Austria,1992,p.80.
- 16] 徳永英司ら、日本物理学会 53 回年会講演概要集、p.213、1998.
- 17] A.Pais,” *Subtle is the Lord-The Science and the Life of Albert Einstein*” Oxford Univ. Press. 1982, (西島和彦監訳「神は老獺にして」産業図書、1987) .
- 18] C.Townsend, W. Ketterle and S.Stringari, Phys.World. March 1997, p.29.
- 19] J.L.Lin and J.P.Wolfe, Phys.Rev.Lett. 71 (1987) 1222.
- 20] T.Goto, Y.Y.Shen, S.Koyama, and T.Yokouchi, Phys.Rev.B55 (1997) 7609.
- 21] S.Kono, N.Naka, M.Hasuo, S.Saito, T.Suemoto, and N.Nagasawa, Solid State Commun. 97 (1996) 455.
- 22] N.Naka, M.Hasuo, S.Kono, and N.Nagasawa, Proc.of ICPS’96 (1996) 273.
- 23] E.Fortin, S.Fafard and A.Mysyrowicz, Phys.Rev.lett. 70 (1993) 3951.
- 24] S.G.Tikhodeev, G.A.Kopelevich and N.A.Gippins, phys.stat.sol.(b) 206 (1998) 45.
- 25] S.G.Tikhodeev, Phys.Rev.Lett.78 (1997) 3225 and A.Mysyrowicz, ibid. 3226.
- 26] D.Kleppner, Phys.Today, August 1996, p.11, (長澤信方訳 パリティ 12 (1997) 4.)